

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 05-155602

(43)Date of publication of application : 22.06.1993

(51)Int.Cl.

C01B 3/38

B01J 8/02

(21)Application number : 03-350278

(71)Applicant : SEKIYU SANGYO KASSEIKA CENTER
COSMO OIL CO LTD

(22)Date of filing : 09.12.1991

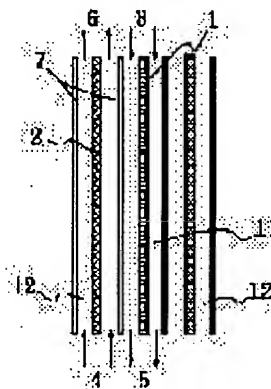
(72)Inventor : TAWARA KINYA
IWANAMI HIKOICHI

(54) THIN TYPE STEAM REFORMING REACTOR

(57)Abstract:

PURPOSE: To provide a thin type steam reforming reactor for generating a gas contg. hydrogen by the reaction of hydrocarbons or alcohols with steam, appropriate as the fuel reformer for the fuel cell with hydrocarbons or alcohols as the fuel and capable of being set in a small area.

CONSTITUTION: A plate-fin compartment is set alternately in multiple stages to constitute a reaction chamber 11 provided with a thin-film steam reforming catalyst 1 and a heating chamber 12 furnished with a combustion catalyst 2. The thickness of the catalyst 1 and combustion catalyst is preferably controlled to 0.2 to 2mm and the thickness of the reaction chamber 11 and heating chamber 12 to 0.7 to 4mm. The plate-fin compartments can be concentrically set in multiple stages to constitute the reactor.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the
examiner's decision of rejection or application
converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The thin shape steam-reforming reactor which constitutes as a reaction chamber possessing the steam-reforming catalyst which cast alternately KOMPAMENTO of the shape of a plate put on multiplex in the shape of a thin film with the heat chamber, and is characterized by the bird clapper.

[Claim 2] The thin shape steam-reforming reactor according to claim 1 with which plate-like KOMPAMENTO puts multiplex in the shape of a concentric circle cartridge, and is characterized by the bird clapper.

[Claim 3] The claim 1, the thin shape steam-reforming reactor of two publications which are characterized by the heat chamber possessing the combustion catalyst cast in the shape of a thin film.

[Claim 4] The thin shape steam-reforming reactor according to claim 1 to 3 characterized by for the thickness of the steam-reforming catalyst cast in the shape of a thin film being 0.2-2mm, and the thickness of a reaction chamber being 0.7-4mm.

[Claim 5] The thin shape steam-reforming reactor according to claim 3 characterized by for the thickness of the combustion catalyst cast in the shape of a thin film being 0.2-2mm, and the thickness of a heat chamber being 0.7-4mm.

[Translation done.]

* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] this invention relates to the thin shape steam-reforming reactor which made small installation area and reactor capacity preferably applicable as a fuel reformer for fuel cells which uses a hydrocarbon or alcohols fuel especially about the steam-reforming reactor which can perform the reaction which obtains the gas which contains hydrogen by the reaction of a hydrocarbon or alcohols, and a steam.

[0002]

[Description of the Prior Art] The reactor aiming at performing conventionally the reaction which obtains the gas which contains hydrogen by the reaction of a hydrocarbon or alcohols, and a steam put in order the reactor of the cylindrical shape filled up with the steam-reforming catalyst into the heating furnace. The reactor of such composition had installation area and large equipment capacity comparatively with few hydrogen yields. Therefore, when assembling a small on-site type fuel cell package, it had become the serious obstacle of making the whole package small.

[0003] The interior of the double cylinder of the recent years comparatively big aperture as a means to overcome this obstacle was made into the combustion chamber, the steam-reforming reactor filled up with the steam-reforming catalyst cast in the shape of a pellet into the portion of a periphery was proposed, and these troubles were improved to some extent. However, the point that a big combustion chamber remained in the center was a problem.

[0004] In JP,62-167203,A, as improvement of this point, the combustion chamber was also made into the shape of a rectangle, and the reactor arranged a steam-reforming reaction chamber and by turns was proposed. However, in this proposal, since the pellet-like catalyst is used for the steam-reforming portion and the combustion portion, it cannot be said that installation area and equipment capacity are small still enough.

[0005] Also in any of the comparatively big double cylinder formula reactor of aperture with which the above was improved, and the reactor (these are hereafter called advanced reactor collectively) which also made the combustion chamber the shape of a rectangle and arranged it a steam-reforming reaction chamber and by turns Practical [the size of the compartment which constitutes the combustion chamber and the steam-reforming reaction chamber] by the width of face of one compartment, about 20-60mm, it is required and becomes a size with still remarkable installation area and equipment capacity as these whole advanced type reactor. For this reason, advancing a miniaturization further is called for.

[0006]

[Objects of the Invention] this invention aims at proposing the steam-reforming reactor which can make width of face of one compartment extremely thinner than the above-mentioned advanced reactor, therefore can make installation area and equipment (reactor) capacity sharply smaller than these advanced type reactor in the steam-reforming reactor which makes above hydrocarbons or alcohols, and steams react, and makes hydrogen generate.

[0007]

[Means for Achieving the Goal] If a steam-reforming catalyst and a combustion catalyst use each catalyst of the shape of that it can cast in the shape of a thin film, and these thin films as a result of repeating research wholeheartedly, in order that this invention persons may attain the above-mentioned purpose each compartment which constitutes a steam reforming room and a combustion chamber (heat chamber) -- as a plate-like thin shape -- the installation area of a steam reactor, and reactor capacity -- **** -- it finds out that it can be made small and came to propose the thin shape steam-reforming reactor of this invention

[0008] That is, the thin shape steam-reforming reactor of this invention is constituted as a reaction chamber possessing the steam-reforming catalyst which cast alternately KOMPAMENTO of the shape of a plate put on multiplex in the shape of a thin film with the heat chamber, and is characterized by the bird clapper. KOMPAMENTO of the shape of an above plate may be put on multiplex in the shape of a concentric circle cartridge, and the combustion catalyst cast the shape of thin film also to the above-mentioned heat chamber may possess it. Moreover, it is characterized also

for the thickness of the steam-reforming catalyst cast in the shape of [above] a thin film being 0.2-2mm, for the thickness of the combustion catalyst which the thickness of a reaction chamber cast 0.7-4mm and in the shape of a thin film being 0.2-2mm, and the thickness of a heat chamber being 0.7-4mm.

[0009] In the reactor of this invention, as a steam-reforming catalyst cast in the shape of a thin film, aluminum 2O₃ and ZrO₂ grade are made into support, a nickel system or a noble-metals system is made into the main active species, and the well-known catalyst component which added the third components, such as La, Ba, Ce, and calcium, can use it preferably.

[0010] In order to cast these catalyst components for a thin film-like steam-reforming catalyst, four sorts of following methods are adopted.

(1) Vacuum deposition method : heat and evaporate a catalyst component to an elevated temperature in a high vacuum make this steam collide with a substrate (for example, for it to be the same the followings, such as a stainless steel foil make it cool and solidify here, and make it into the shape of a thin film.

[0011] (2) Sputter : if an ion beam with kinetic energy dozens of eV or more is irradiated on the front face of a solid catalyst component, the atom which exists near the front face of this component acquires a part of kinetic energy which this ion beam has, and is emitted into a vacuum, and this atom will arrive at a substrate front face, and will form a film. As this ion beam, inactive substances, such as Ar and Kr, are used and direct-current 2 pole sputtering, direct-current bias sputtering, unsymmetrical alternating current sputtering, getter sputtering, RF sputtering, etc. are used as a sputter method which generates an ion beam.

[0012] (3) The chemical method : supply on a substrate the gas of the compound which consists of a catalyst component, or a simple substance, and form a desired thin film according to the chemical reaction on the inside of a gaseous phase, or the front face of a substrate.

[0013] (4) Dip painting cloth method : first, flood a substrate with the solution of the support component of the above mentioned catalyst components, apply this support component solution, and bake this paint film in an elevated temperature and a short time. This dip painting cloth and printing operation are repeated, it considers as the support component film of request thickness, and this film is baked by the elevated temperature and the long time from the above. Subsequently, this support component film is made to support the active ingredient of the above-mentioned catalyst components, and the third component by the same dip painting cloth method as the case of a support component, and it calcinates at an elevated temperature for a long time.

[0014] The method that the steam-reforming catalyst of the shape of a thin film cast as mentioned above is shown in drawing 10 (A) - (C) as a method of holding in a reaction chamber, for example is adopted. By the method of this drawing (A), it bends to a wave so that this may be illustrated using the thin spacer (for example, wire gauze) 102 which can secure the flow of a fluid between the plate-like reaction chamber side attachment wall 100 and the thin film-like catalyst 101, and the thin film-like catalyst 101 is inserted with this bent spacer 102 of two sheets, and it installs in a reaction chamber. By the method of this drawing (B), the thin film-like catalyst 101 is held in a reaction chamber by mincing the slot 103 used as the passage of a fluid on the 100th page of the side attachment wall of a reaction chamber, and inserting the thin film-like catalyst 101 by the 100th page of the side attachment wall of a portion without this slot 103. By the method of this drawing (C), the thin film-like catalyst 101 is held in a reaction chamber by forming much salients 104 in the 100th page of the side attachment wall of a reaction chamber, and supporting the thin film-like catalyst 101 by this salient 104.

[0015] If the meaning which will be made into the shape of a thin film if too not much thick is lost and it is too thin much conversely, since the catalyst effect will not be acquired, the thickness of the steam-reforming catalyst of the shape of an above thin film has about about 2-0.2 desirable mm, and its about 1-0.2mm is the most desirable. The thickness (namely, interval of the plate used as the wall of both the sides of a reaction chamber) of a reaction chamber Depending on the installation mode into the reaction chamber of about [that the miniaturization which is one of the purposes of this invention cannot be attained if too not much thick], and a thin film-like steam-reforming catalyst Since there is un-arranging [of some reforming raw materials which pass through the inside of a reaction chamber a generating the situation referred to as being unable to contact this catalyst, a reforming reaction rate becoming small too not much thin conversely, and productivity falling], It is necessary to specifically make it about about 4-0.7mm, and about about 1-1.8mm is [about about 0.5-2mm of thickness pluses of a catalyst] desirable practical.

[0016] The reaction chamber equipped with the steam-reforming catalyst of the shape of an above thin film and a heat chamber divide with the septum (it is the same the thing of the plate used as the wall of both the sides of the above-mentioned reaction chamber, and the following) of one sheet, and carrying out in the direction of a counterflow is [that raw material of the steam-reforming reaction in a reaction chamber and the flow of a resultant, and the flow of the high temperature fluid in a heat chamber] desirable in respect of reaction efficiency and thermal efficiency.

[0017] By the way, in the reactor of this invention, heat required for a steam-reforming reaction obtains the inside of heat chamber by the flowing high-temperature fluid. The elevated-temperature gas which fuel was burned and was

obtained as this high-temperature fluid in the combustion chamber prepared independently can also be used, and the combustion gas which direct fuel was burned and was obtained within the heat chamber can also be used. When using the reactor of this invention combining a fuel cell, the hydrogen residual gas discharged from a fuel cell can be introduced into a heat chamber, and what this was burned as fuel and obtained it can also be used.

[0018] Thus, when burning fuel within a heat chamber, it is desirable to make a combustion catalyst provided in a heat chamber. As this combustion catalyst, ceramics, such as an alumina, silicon carbide, and silicon nitride, are made into support, and the well-known catalyst component which made noble metals support can be used. Although what was cast in the shape of a pellet as usual can also be used for these combustion catalysts, it is desirable to use what was cast in the shape of a thin film like the above-mentioned steam-reforming catalyst when the reactor of this invention is miniaturized further.

[0019] In order to cast these for a thin film-like combustion catalyst, the molding method of the above-mentioned thin film-like steam-reforming catalyst and the same method can be adopted, and the method of holding the thin film-like steam-reforming catalyst which also described above the method of holding a thin film-like combustion catalyst in a heat chamber in a reaction chamber, and the same method are adopted. And the width of face of the heat chamber in case of using the thickness of the combustion catalyst cast in the shape of a thin film and this thin film-like catalyst is good by the same thickness and same width of face by the same reason as the thickness of the steam-reforming catalyst of the shape of an above-mentioned thin film, and the width of face of a reaction chamber.

[0020] Furthermore, in the reactor of this invention, the reaction chamber and heat chamber possessing the steam-reforming catalyst of the shape of an above thin film can also be constituted in piles in multiplex in the shape of a concentric circle cartridge. At this time, a thin film-like combustion catalyst can be provided also in a heat chamber.

[0021] In addition, in the reactor of this invention, the heat exchange of the reaction generation gas taken out from a reaction chamber, and gas and the combustion gas which are discharged from a heat chamber and which carried out temperature reduction can be carried out to a steam-reforming raw material, a combustion air, and fuel gas by respectively well-known technique, and they can strive for improvement in thermal efficiency.

[0022] Moreover, the raw material of the steam-reforming reaction which can be used with the reactor of this invention does not interfere from well-known raw materials, such as a hydrocarbon of C1-C4, a hydrocarbon of naphtha LGT oil, alcohol of C1-C4, and alcohol beyond C5. Furthermore, as for the conditions of the steam-reforming reaction in reactor of this invention, it is desirable to be referred to as the temperature of about 600-900 degrees C, pressure about 0.5 to 15 kg/cm² (absolute pressure), LHSV abbreviation 0.5-6h⁻¹, and S (steam)/C (carbon) (mole ratio) about 2-5 general.

[0023]

[Function] Although the speed of a steam-reforming reaction itself is very early, since a steam-reforming reaction is very big endothermic reaction, the substantial reaction rate has brought a result restricted with rate of heat transfer. Until now, as a remedy of heat transfer area, although to improve the coil of plate form was also tried, it was inadequate. [of just it]

[0024] That is, the coil of plate form tended to be filled up with the conventional pellet-like molding catalyst, the reaction chamber tended to be constituted, thickness of this reaction chamber tended to be made thin, and it was going to increase the heat transfer area per unit catalyst. However, on the relation of the pressure loss of a reaction floor, as for pellet size, about 3mm was a limitation, therefore about 10mm also of the thickness of a reaction chamber was a limit. And since the flow of the atmosphere in a reaction chamber passed along the gap of a pellet catalyst, the flow in the laminar-film portion in the wall of a reaction chamber became bad, and it had become the obstacle of heat transfer. [0025] On the other hand, since what was cast by the reactor of this invention in the shape of a thin film as a steam-reforming catalyst is used, compared with the case where the catalyst of the shape of a conventional pellet is used, thickness (interval of a plate) of a reaction chamber can be made very small, and the problem of the above-mentioned heat transfer area can be solved. That is, since a thin film-like steam-reforming catalyst is used, while pressure loss does not arise but being able to narrow a plate interval, the flow of the atmosphere in the laminar-film portion in the plate section becomes good, and the thermal resistance in this portion does not arise. And a thin film-like steam-reforming catalyst extends the heat transfer area of the catalyst itself.

[0026] By these, rate of heat transfer is improved in the reactor of this invention, and a reaction more nearly high-speed than the case where the catalyst of the shape of a conventional pellet is used is attained, and it decreases more sharply than the case where installation area and reactor capacity use the catalyst of the shape of a conventional pellet as this result.

[0027] For example, if about 1mm is made to the thickness of the steam-reforming catalyst and combustion catalyst which were cast in the shape of a thin film, respectively, about 2mm of the thickness of a reaction chamber and a heat chamber is enough respectively. If the size of each of both these loculus in every direction is set to about 600mm, respectively -- about -- for the fuel cells of about 50 kw(s), it becomes the inside dimension of about 87mm except for

heat insulator by the reaction chamber and the heat chamber In the case of the conventional diameter of macrostomia double cylinder method in this scale, it becomes the diameter of about 500mm, and a length of about 1000mm with inside dimension, and about 1/6 becomes 3 in about 1/6 and installation area by the reactor of this invention with the reactor (equipment) capacity of this conventional diameter of macrostomia double cylinder method. moreover, the ca where put plate-like KOMPAMENTO (namely, an above-mentioned reaction chamber and an above-mentioned heat chamber) on multiplex in the shape of a concentric circle cartridge, and the reactor of this invention is constituted -- setting -- the object for the fuel cells of about 50 kw(s) -- it is -- the diameter of about 217mm, and a height of about 900mm -- becoming -- the reactor (equipment) capacity of the above-mentioned conventional diameter of macrostomia double cylinder method -- or more about 1 / 6, and installation area -- about -- it is set

[0028]

[Example] Drawing 1 is an external view for explaining the fundamental composition of the reactor of this invention and drawing 2 is the cross section of drawing 1. The reactor of this invention shown in drawing 1 has the reaction chamber 11 where the catalyst was stored, and composition which sandwiched the both sides by the heat chamber 12. The size of the reaction chamber 11 of this reactor, and a heat chamber 12 It is 45mmx40mmx2mm. inside a reaction chamber 11 As shown in drawing 2, it is a thin film-like steam-reforming catalyst (it is what was formed by the dip painting cloth method). In the NiO15wt% and K₂O5wt% thing, support is installed in thickness 250micrometer>> p the amount of aluminum₂O₃ <<generation of 0.8677g, and one side for use (the thickness of a spacer is included and the whole thickness is 1mm) 1, and the active metal is mostly installed in the center. Installation into the reaction chamber 11 of this catalyst 1 is based on a method like drawing 10 (A) - (C) mentioned above. In addition, the method of drawing 10 (A) was adopted in this example.

[0029] Reforming the raw material (the hydrocarbon or the alcohols, and steam) introduced from the line 3 are supplied to the both sides of the thin film-like steam-reforming catalyst 1 of the reaction chamber 11 above-mentioned interior and a reaction is performed on them. The gas after a reaction is taken out from a line 5.

[0030] Heat required for the above-mentioned reaction is supplied through a septum 7 from the heat chamber 12 currently installed in the both sides of a reaction chamber 11. That is, in this example, hot gas is introduced into a heat chamber 12 from a line 10, and the heat of this gas is supplied to a reaction chamber 11 through a septum 7. The lowered gas is discharged from a line 6. Thus, the flow of the reforming raw material in a reaction chamber 11 and the flow of the hot gas in a heat chamber 12 serve as the direction of a counterflow. In addition, the heat insulator is given to the outside (namely, outside of the reactor of this invention) of a heat chamber 12 although illustration is omitted.

[0031] In the above-mentioned example, the increase in reaction capacity can be easily performed by extending KOMPAMENTO of a heat chamber 12 and a reaction chamber 11.

[0032] The reactor of this invention constituted as mentioned above was used, using the lamp oil (0.18 ppm of sulfur contents) and the steam which were enough desulfurized as a reforming raw material introduced from a line 3, hot combustion gas (obtained gas which was burned with another combustion facility) was introduced into the heat chamber 12 from the line 10 so that the outlet temperature (temperature of reformed gas <<hydrogen content gas>> taken out from a line 5) of a reaction chamber 11 might be kept at 800 degrees C, and the reforming reaction was performed. The result of this reaction is shown in Table 1.

[0033] Moreover, the result which performed the reforming reaction is shown in Table 2, using as a reforming raw material the lamp oil (0.18 ppm of sulfur contents) and steam which were desulfurized enough, and keeping reaction chamber outlet temperature at 800 degrees C with the cylinder-like reactor filled up with the conventional granular catalyst (what makes support 2O₃<<0.8677g [of aluminum]>>, and makes an active metal NiO15wt% and K₂O5wt% is used) for comparison.

[0034]

[Table 1]

反応室11出口温度	800 (°C)
反応室11圧力	8.2 (kg/cm ²)
LHVS	4.6 (h ⁻¹)
S/C	4.0 (mol/mol)
改質ガス組成	
H ₂	69.9 (vol%)
CO	11.5 (vol%)
CH ₄	2.2 (vol%)
CO ₂	16.4 (vol%)

[0035]

[Table 2]

反応室出口温度	800 (°C)
反応室圧力	8.2 (kg/cm ²)
LHVS	1.0 (h ⁻¹)
S/C	4.0 (mol/mol)
改質ガス組成	
H ₂	69.9 (vol%)
CO	11.7 (vol%)
CH ₄	2.3 (vol%)
CO ₂	16.1 (vol%)

[0036] The reactor of this invention was functioning similarly, in spite of having been 4.6 times the reaction raw material feeding speed of this compared with the reactor filled up with the conventional pellet-like steam-reforming catalyst, and when the conventional reactor using the pellet-like steam-reforming catalyst was raised to a reaction raw material feeding speed of the same grade as the reactor of this invention and it went, the fall of a reaction rate was so that clearly from Table 1 and Table 2. It is proved that it can miniaturize by this more sharply [according to the reactor of this invention] than the reactor filled up with the conventional pellet-like steam-reforming catalyst.

[0037] Drawing 3 (external view) and drawing 4 (cross section), drawing 5 (cross section), and drawing 6 (cross section) are drawings showing each of other example of the reactor of this invention, and show the case where a thin film-like combustion catalyst is installed also in the interior of a heat chamber 12, in these examples.

[0038] In the example shown in drawing 3, it consists of seven KOMPAMENTO and the heat chamber 12 and the reaction chamber 11 are arranged by turns. it is the cross section of drawing 3, and the combustion catalyst 2 cast in the shape of a thin film is installed in the center of the interior of a heat chamber 12, and eight fuel feeding pipes 8 are horizontally arranged in the heat-chamber 12 interior, and drawing 4 is shown in drawing 8 which is the a-b line cross section of drawing 3 at a fuel feeding pipe 8 -- as -- many nozzles -- a hole 9 prepares -- having -- **** -- this nozzle the fuel introduced from the line 4 with the hole 9 is careful to the thin film-like combustion catalyst 2 enough In addition, as shown in drawing 5, the above fuel feeding pipes do not need to be arranged by the heat chamber 12. the exhaust gas of a heat chamber 12 -- drawing 4 and drawing 5 -- in any case, it is discharged from a line 6 moreover, heat chamber 12 and a reaction chamber 11 -- drawing 4 and drawing 5 -- it is divided by the septum 7 like the exam which showed drawing 1 and drawing 2 in any case

[0039] When combining with a fuel cell the reactor shown in drawing 4 - drawing 5 , the hydrogen residual gas discharged from a fuel cell can also be used as fuel. In addition, supply of the reforming raw material in the example shown in drawing 4 - drawing 5 and the ejection of the reformed gas after a reforming reaction are the same as the example shown in drawing 1 and drawing 2 .

[0040] Drawing 6 shows the example which changed the installation position and installation quantity of the thin film like combustion catalyst 2 and the thin film-like steam-reforming catalyst 1 which are installed in the interior of each [of the heat chamber 12 in drawing 4 , and a reaction chamber 11]. That is, in the example of drawing 6 , the steam reforming catalyst 1 cast in total by each of the side which faces the interior of the reaction chamber 11 of four and a septum 7 in the shape of a thin film in the combustion catalyst 2 cast by each of the side which faces the interior of the heat chamber 12 of a septum 7 in the shape of a thin film is installed in the two sum totals. And four fuel feeding pipes 8 are arranged in the center of the interior of a heat chamber 12, and the fuel introduced from the line 4 shown in drawing 8 like the case where it is drawing 4 is supplied to the combustion catalyst 2 from this supply pipe 8, and serves as hot heating gas by the catalyzed combustion. In addition, as shown in drawing 7 , the above fuel feeding pipes do not need to be arranged by the heat chamber 12.

[0041] Moreover, thin film-like the steam-reforming catalyst 1 and the combustion catalyst 2 are installed in right-and-left both sides of the inside wall surface of a reaction chamber 11 and a combustion chamber 12 in the example shown in drawing 6 - drawing 7 . Of course, although it can install only in the wall surface which is one side either, it is desirable to prepare in right-and-left both sides from thermal balance. As well as the case of drawing 3 - drawing 4 when combining with a fuel cell the reactor shown in drawing 6 - drawing 7 , the hydrogen residual gas discharged from a fuel cell can be used as fuel. In addition, also in the example shown in drawing 6 - drawing 7 , supply of a reforming raw material and the ejection of the reformed gas after a reforming reaction are the same as the example shown in drawing 1 and drawing 2 .

[0042] Drawing 9 is what showed one example at the time of constituting plate-like KOMPAMENTO for the reactor this invention in piles in multiplex in the shape of a concentric circle cartridge, and (A) is explanatory drawing in which an external view and (B) show the A-B line cross section of (A), and (C) shows the anchoring mode of piping for introduction and extraction of a raw material etc. The plate which constitutes the side attachment wall of the reaction chamber 11 which installed mostly in the center the thin film-like steam-reforming catalyst 1 held to the reticulated spacer of the mode shown in drawing 2 from this example, The plate (these plates serve as the septum 7 of a reaction chamber 11 and a heat chamber 12) which constitutes the side attachment wall of a heat chamber 12 Bending so that may become cylindrical shape-like, it is what constituted the reactor of this invention for the plate of the shape of the cylindrical shape in piles in the shape of a concentric circle, and the same sign as drawing 1 - drawing 2 shows the same function part as drawing 1 - drawing 2 among drawing 9 . Moreover, although illustration is omitted, it cannot overemphasized that a thing as shown in drawing 3 -8 which also made the heat chamber 12 possess the thin film-like combustion catalyst 2 can be constituted in the shape of [as shown in drawing 9] a concentric circle cartridge.

[0043]

[Effect of the Invention] According to the reactor of this invention, as explained in full detail above, as compared with the steam-reforming reactor which uses pellet-like a conventional steam-reforming catalyst and a conventional combustion catalyst, it can realize, and reactor capacity and installation area are very small, and a large miniaturization can be carried out. Therefore, it can apply preferably as a fuel reformer for fuel cells which uses a hydrocarbon or alcohols as fuel, and a small on-site type fuel cell package can put in practical use easily. And if the thin film-like combustion catalyst is made to provide also in a heat chamber at this time, the discharge fuel hydrogen residual gas from a fuel cell can be introduced into a heat chamber, the heat which this is burned as fuel and obtained can also be supplied to a steam-reforming reaction, and an improvement of thermal efficiency can also be aimed at.

[Translation done.]

(19)日本国特許庁(J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-155602

(43)公開日 平成5年(1993)6月22日

(51)IntCl⁵

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

C 0 1 B 3/38

9041-4G

B 0 1 J 8/02

E 9041-4G

審査請求 未請求 請求項の数5(全 8 頁)

(21)出願番号 特願平3-350278

(22)出願日 平成3年(1991)12月9日

特許法第30条第1項適用申請有り 1991年10月16日発行
の日刊工業新聞に掲載

(71)出願人 590000455

財団法人石油産業活性化センター
東京都港区麻布台2丁目3番22号

(71)出願人 000105567

コスモ石油株式会社
東京都港区芝浦1丁目1番1号

(72)発明者 俵 欣也

埼玉県浦和市前地3丁目9番9号

(72)発明者 岩波 彦一

茨城県猿島郡五霞村元栗橋5087番地10号

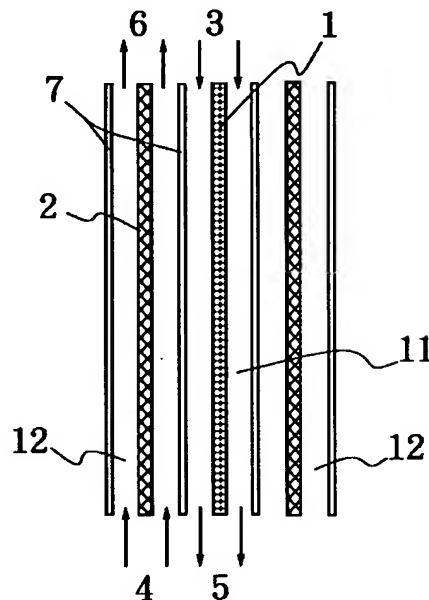
(74)代理人 弁理士 久保田 千賀志 (外1名)

(54)【発明の名称】 薄型水蒸気改質反応器

(57)【要約】

【目的】炭化水素やアルコール類と水蒸気との反応により水素を含有するガスを生成する水蒸気改質反応器で、炭化水素やアルコール類を燃料とする燃料電池用の燃料改質装置として好適な設置面積の小さい薄型水蒸気改質反応器を提供する。

【構成】多重に重ねられたプレートフィン状のコンパートメントを一つおきに、薄膜状に成型した水蒸気改質触媒1を具備する反応室11と、薄膜状に成型した燃焼触媒2を具備する加熱室12として構成する。薄膜状の水蒸気改質触媒1および燃焼触媒の厚みは0.2~2mmで、反応室11および加熱室12の厚みは0.7~4mmとすることが好ましい。プレートフィン状のコンパートメントを同心円筒形状に多重に重ねて構成してもよい。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 多重に重ねられたプレート状のコンパートメントを、一つおきに、加熱室と、薄膜状に成型した水蒸気改質触媒を具備する反応室として構成してなることを特徴とする薄型水蒸気改質反応器。

【請求項2】 プレート状のコンパートメントが、同心円筒形状に多重に重ねられてなることを特徴とする請求項1記載の薄型水蒸気改質反応器。

【請求項3】 加熱室が、薄膜状に成型した燃焼触媒を具備していることを特徴とする請求項1、2記載の薄型水蒸気改質反応器。

【請求項4】 薄膜状に成型した水蒸気改質触媒の厚みが0.2～2mmで、かつ反応室の厚みが0.7～4mmであることを特徴とする請求項1～3記載の薄型水蒸気改質反応器。

【請求項5】 薄膜状に成型した燃焼触媒の厚みが0.2～2mmで、かつ加熱室の厚みが0.7～4mmであることを特徴とする請求項3記載の薄型水蒸気改質反応器。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、炭化水素またはアルコール類と水蒸気との反応により水素を含有するガスを得る反応を行うことのできる水蒸気改質反応器に関し、特に、炭化水素またはアルコール類を燃料とする燃料電池用の燃料改質装置として好ましく適用することのできる、設置面積および反応器容積を小さくした薄型水蒸気改質反応器に関する。

【0002】

【従来の技術およびその問題点】従来、炭化水素またはアルコール類と水蒸気との反応により水素を含有するガスを得る反応を行うことを目的とした反応装置は、加熱炉の中に水蒸気改質触媒を充填した円筒形の反応器を並べたものであった。このような構成の反応装置は、水素発生量の少ないわりに、設置面積および装置容積が大きかった。従って、小型オンサイト型燃料電池パッケージを組み立てるときに、パッケージ全体を小型にするこの大きな障害になっていた。

【0003】この障害を乗り越える手段として、近年、比較的大きな口径の二重円筒の内部を燃焼室とし、外周の部分にベレット状に成型した水蒸気改質触媒を充填した水蒸気改質反応装置が提案され、これらの問題点がある程度改良された。しかし、その中心に大きな燃焼室が残る点が問題であった。

【0004】特開昭62-167203号公報においては、この点の改良として、燃焼室も矩形状にし、水蒸気改質反応室と交互に配列した反応装置が提案された。しかし、この提案においても、ベレット状の触媒が水蒸気改質部分と燃焼部分とに使用されているため、設置面積、装置容積ともにまだ十分に小さいとは言えない。

【0005】上記の改良された比較的大きな口径の二重円筒式反応装置、燃焼室も矩形状にし水蒸気改質反応室と交互に配列した反応装置（以下、これらをまとめて改良型反応装置と言う）のいずれにおいても、燃焼室および水蒸気改質反応室を構成しているコンパートメントの大きさは、一つのコンパートメントの幅で実用的には20～60mm程度は必要であり、これら改良型反応装置全体としては、設置面積、装置容積ともにまだかなりの大きさになる。このため、さらに小型化を進めることが求められる。

【0006】

【発明の目的】本発明は、以上のような炭化水素またはアルコール類と水蒸気とを反応させて水素を生成させる水蒸気改質反応器において、一つのコンパートメントの幅を上記の改良型反応装置よりも極端に薄くすることができ、従って設置面積、装置（反応器）容積ともに、これら改良型反応装置よりも大幅に小さくすることのできる水蒸気改質反応器を提案することを目的とする。

【0007】

【目的を達成するための手段】本発明者らは、上記の目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、水蒸気改質触媒および燃焼触媒は薄膜状に成型することができること、これら薄膜状の各触媒を使用すれば、水蒸気改質室および燃焼室（加熱室）を構成する各コンパートメントをプレート状の薄型として、水蒸気改質装置の設置面積、反応器容積ともに極く小さくすることのできることを見出し、本発明の薄型水蒸気改質反応器を提案するに至った。

【0008】すなわち、本発明の薄型水蒸気改質反応器は、多重に重ねられたプレート状のコンパートメントを、一つおきに、加熱室と、薄膜状に成型した水蒸気改質触媒を具備する反応室として構成してなることを特徴とする。上記のプレート状のコンパートメントは、同心円筒形状に多重に重ねられていてもよく、上記の加熱室にも、薄膜状に成型した燃焼触媒が具備されていてもよい。また、上記の薄膜状に成型した水蒸気改質触媒の厚みが0.2～2mmで、かつ反応室の厚みが0.7～4mm、薄膜状に成型した燃焼触媒の厚みが0.2～2mmで、かつ加熱室の厚みが0.7～4mmであることをも特徴とする。

【0009】本発明の反応器において、薄膜状に成型される水蒸気改質触媒としては、 Al_2O_3 、 ZrO_2 等を担体とし、ニッケル系または貴金属系を主活性種とし、La、Ba、Ce、Ca等の第三成分を加えた公知の触媒成分が好ましく使用できる。

【0010】これらの触媒成分を薄膜状の水蒸気改質触媒に成型するには、次のような4種の方法が採用される。

(1) 真空蒸着法：高真空中で、触媒成分を高温に加熱して蒸発させ、該蒸気を基板（例えば、ステンレス鋼箔

等、以下同じ)に衝突させ、ここで冷却・凝固させて薄膜状にする。

【0011】(2)スパッタ法:数十eV以上の運動エネルギーを持つイオンビームを、固体の触媒成分の表面に照射すると、該成分の表面近傍に存在する原子が、該イオンビームの持つ運動エネルギーの一部を得て真空中に放出され、該原子が基板表面に到達して膜を形成する。このイオンビームとしては、ArやKr等の不活性物質が使用され、イオンビームを発生させるスパッタ方式としては、直流2極スパッタリング、直流バイアススパッタリング、非対称交流スパッタリング、ゲッタスパッタリング、高周波スパッタリング等が使用される。

【0012】(3)化学的方法:触媒成分からなる化合物や単体のガスを基板上に供給し、気相中または基板表面での化学反応により、所望の薄膜を形成する。

【0013】(4)浸漬塗布法:まず、基板を上記の触媒成分のうちの担体成分の溶液に浸漬して該担体成分溶液を塗布し、この塗膜を高温、短時間で焼付ける。この浸漬塗布および焼付け操作を繰り返して所望厚みの担体成分膜とし、この膜を上記より高温かつ長時間で焼付ける。次いで、該担体成分膜に、上記の触媒成分のうちの活性成分や第三成分を担体成分の場合と同様の浸漬塗布法により担持させ、高温で長時間焼成する。

【0014】上記のようにして成型される薄膜状の水蒸気改質触媒を反応室内に保持する方法としては、例えば、図10(A)～(C)に示すような方法が採用される。同図(A)の方法では、プレート状反応室側壁100と薄膜状触媒101の間に流体の流れが確保できる薄いスペーサー(例えば金網)102を用い、これを図示するように波形に折り曲げ、この折り曲げた2枚のスペーサー102で薄膜状触媒101を挟んで、反応室内に設置する。同図(B)の方法では、反応室の側壁100面に流体の流路となる溝103を刻み、この溝103の無い部分の側壁100面で薄膜状触媒101を挟むことにより、薄膜状触媒101を反応室内に保持する。同図(C)の方法では、反応室の側壁100面に多数の突起104を設け、該突起104で薄膜状触媒101を支持することにより、薄膜状触媒101を反応室内に保持する。

【0015】上記の薄膜状の水蒸気改質触媒の厚みは、余り厚過ぎると、薄膜状とする意義がなくなり、逆に余り薄過ぎると、触媒効果が得られないため、約2～0.2mm程度が好ましく、約1～0.2mmが最も好ましい。反応室の厚み(すなわち、反応室の両サイドの壁となるプレートの間隔)は、余り厚過ぎると、本発明の目的の1つである小型化が達成できないばかりか、薄膜状水蒸気改質触媒の反応室内への取り付け態様によっては、反応室内を通過する改質原料の一部が該触媒に接触できないと言う事態も発生し、逆に余り薄過ぎると、改質反応速度が小さくなり、生産性が低下する等の不都合

があるため、触媒の厚みプラス約0.5～2mm程度、具体的には約4～0.7mm程度にする必要があり、実用的には約1～1.8mm程度が好ましい。

【0016】上記の薄膜状の水蒸気改質触媒を備えた反応室と、加熱室とは、一枚の隔壁(上記した反応室の両サイドの壁となるプレートのこと、以下同じ)で仕切り、反応室内の水蒸気改質反応の原料および反応生成物の流れと、加熱室内の高温流体の流れは、向流方向にすることが、反応効率および熱効率の点で好ましい。

【0017】ところで、本発明の反応器では、水蒸気改質反応に必要な熱は、加熱室内を流れる高温流体により得る。この高温流体としては、別に設けた燃焼室で燃料を燃焼させて得た高温ガスを使用することもできるし、加熱室内で直接燃料を燃焼させて得た燃焼ガスを使用することもできる。燃料電池と組み合わせて本発明の反応器を使用するときは、燃料電池から排出される水素残存ガスを加熱室に導入し、これを燃料として燃焼させて得たものを使用することもできる。

【0018】このように、加熱室内で燃料を燃焼される場合は、加熱室内に燃焼触媒を具備させておくことが好ましい。この燃焼触媒としては、アルミナ、炭化ケイ素、窒化ケイ素等のセラミックを担体とし、貴金属を担持させた公知の触媒成分が使用できる。これらの燃焼触媒は、従来と同様にペレット状に成型したものを使用することもできるが、上記の水蒸気改質触媒と同様に薄膜状に成型したものを使用することが、本発明の反応器をさらに小型化する上で好ましい。

【0019】これらを薄膜状の燃焼触媒に成型するには、上記した薄膜状水蒸気改質触媒の成型方法と同様の方法が採用でき、薄膜状の燃焼触媒を加熱室内に保持する方法も、上記した薄膜状水蒸気改質触媒を反応室内に保持する方法と同様の方法が採用される。そして、薄膜状に成型する燃焼触媒の厚み、および該薄膜状触媒を使用する場合の加熱室の幅は、上記した薄膜状の水蒸気改質触媒の厚みおよび反応室の幅と同様の理由により同様の厚みおよび幅でよい。

【0020】さらに、本発明の反応器においては、上記の薄膜状の水蒸気改質触媒を具備する反応室および加熱室を、同心円筒形状に多重に重ねて構成することもできる。このとき、加熱室にも薄膜状の燃焼触媒を具備しておくことができる。

【0021】なお、本発明の反応器において、反応室から取り出される反応生成ガス、および加熱室から排出される温度降下したガスや燃焼排ガスは、それぞれ公知の手法により水蒸気改質原料、燃焼用空気、燃料ガスと熱交換して、熱効率の向上につとめることができる。

【0022】また、本発明の反応器で使用するができる水蒸気改質反応の原料は、C₁～C₄の炭化水素、ナフサ灯油の炭化水素、C₁～C₄のアルコール、C₅以上のアルコール等の公知の原料で差し支えない。さ

らに、本発明の反応器における水蒸気改質反応の条件は、概ね、温度約600～900℃、圧力約0.5～15Kg/cm²（絶対圧）、LHSV約0.5～6h⁻¹、S（水蒸気）/C（炭素）（モル比）約2～5とすることが好ましい。

【0023】

【作用】水蒸気改質反応の速度自体は非常に早いものであるが、水蒸気改質反応は非常に大きな吸熱反応であるため、実質的な反応速度は伝熱速度により制限される結果となっている。これまで、伝熱面積の改善策として、

プレート形式の反応管を改良することも試みられたが、それだけでは不十分であった。
【0024】すなわち、プレート形式の反応管に従来のペレット状成型触媒を充填して反応室を構成し、この反応室の厚みを薄くして単位触媒当たりの伝熱面積を増やそうとした。しかし、反応床の圧力損失の関係上、ペレットサイズは3mm程度が限界であり、そのため反応室の厚みも10mmぐらいが限度であった。しかも、反応室内のガス体の流れは、ペレット触媒の間隙を通るため、反応室の壁部における境膜部分での流れが悪くなり、伝熱の障害になっていた。

【0025】これに対し、本発明の反応器では、水蒸気改質触媒として薄膜状に成型したものをを用いるため、従来のペレット状の触媒を使用する場合に比べ、反応室の厚み（プレートの間隔）をきわめて小さくすることができ、上記の伝熱面積の問題を解決することができる。すなわち、薄膜状の水蒸気改質触媒を使用するため、圧力損失が生ぜず、プレート間隔を狭くできるとともに、プレート部における境膜部分でのガス体の流れが良好となって、該部分での伝熱抵抗が生じない。しかも、薄膜状の水蒸気改質触媒は、触媒自体の伝熱面積を広げる。

【0026】これらにより、本発明の反応器では、伝熱速度が改善され、従来のペレット状の触媒を使用する場合よりも高速の反応が可能となり、この結果として、設置面積および反応器容積が従来のペレット状の触媒を使用する場合より大幅に減少する。

【0027】例えば、薄膜状に成型した水蒸気改質触媒と燃焼触媒との厚みをそれぞれ約1mmに仕上げれば、反応室および加熱室の厚さはそれぞれ約2mmで十分である。この両室それぞれの縦横の寸法を、仮に、それぞれ約600mmとすると、約50kwの燃料電池用には、反応室、加熱室で、断熱材を除いて、内寸約87mmとなる。この規模における従来の大口径二重円筒方式の場合、内寸で直径約500mm、長さ約1000mmとなり、本発明の反応器では、この従来の大口径二重円筒方式の反応器（装置）容積で約1/6、設置面積で約1/3となる。また、プレート状のコンパートメント（すなわち、上記の反応室および加熱室）を同心円筒形状に多重に重ねられて本発明の反応器を構成する場合におい

ては、約50kwの燃料電池用で、直径約217mm、高さ約900mmとなり、上記の従来の大口径二重円筒方式の反応器（装置）容積で約1/6以上、設置面積で約1/5となる。

【0028】

【実施例】図1は本発明の反応器の基本的な構成を説明するための外観図であり、図2は図1の断面図である。図1に示す本発明の反応器は、触媒の格納された反応室11とその両側を加熱室12で挟んだ構成になっている。この反応器の反応室11および加熱室12の大きさは、45mm×40mm×2mmであり、反応室11の内部には、図2に示すように、薄膜状水蒸気改質触媒（浸漬塗布法により形成されたもので、担体がAl₂O₃《生成量0.8677g、片面当たりの厚み250μm》、活性金属がNiO15wt%およびK₂O5wt%のものを使用）（スパーサーの厚みを含めて全体の厚さが1mm）1が、ほぼ中央に設置されている。この触媒1の反応室11内への設置は、前述した図10（A）～（C）のような方法による。なお、本例では図10（A）の方法を採用した。

【0029】上記の反応室11内部の薄膜状水蒸気改質触媒1の両側に、ライン3から導入された改質原料（炭化水素またはアルコール類と、水蒸気と）が供給されて、反応が行われる。反応後のガスは、ライン5から取り出される。

【0030】上記の反応に必要な熱は、反応室11の両側に設置されている加熱室12より、隔壁7を経て供給される。すなわち、本例では、高温のガスがライン10から加熱室12に導入され、該ガスの熱が隔壁7を経て反応室11に供給される。降温したガスは、ライン6から排出される。このように、反応室11内の改質原料の流れと、加熱室12内の高温のガスの流れは、向流方向となっている。なお、加熱室12の外側（すなわち、本発明の反応器の外側）には、図示は省略するが、断熱材が施されている。

【0031】上記の実施例では、加熱室12および反応室11のコンパートメントを増設することにより、反応容量の増加が容易にできる。

【0032】以上のように構成される本発明の反応器を使用し、ライン3から導入する改質原料として十分脱硫された灯油（硫黄分0.18ppm）と水蒸気を用い、反応室11の出口温度（ライン5から取り出される改質ガス《水素含有ガス》の温度）を800℃に保つように加熱室12に高温の燃焼ガス（別の燃焼設備で燃焼させた得たガス）をライン10から導入して、改質反応を行った。この反応の結果を表1に示す。

【0033】また、比較のために、従来の粒状触媒（Al₂O₃《0.8677g》を担体とし、NiO15wt%およびK₂O5wt%を活性金属とするものを使用）を充填した円筒状反応器により、十分脱硫された灯

油（硫黄分0.18ppm）と水蒸気を改質原料とし、*【0034】
反応室出口温度を800℃に保ちながら改質反応を行っ【表1】
た結果を表2に示す。*

反応室11出口温度	800 (°C)
反応室11圧力	8.2 (kg/cm ²)
LHVS	4.6 (h ⁻¹)
S/C	4.0 (mol/mol)
改質ガス組成	
H ₂	69.9 (vol%)
CO	11.5 (vol%)
CH ₄	2.2 (vol%)
CO ₂	16.4 (vol%)

【0035】

※20※【表2】

反応室出口温度	800 (°C)
反応室圧力	8.2 (kg/cm ²)
LHVS	1.0 (h ⁻¹)
S/C	4.0 (mol/mol)
改質ガス組成	
H ₂	69.9 (vol%)
CO	11.7 (vol%)
CH ₄	2.3 (vol%)
CO ₂	16.1 (vol%)

【0036】表1、表2から明らかなように、本発明の反応器は、従来のペレット状水蒸気改質触媒を充填した反応器に比べ、反応原料送入速度が4.6倍であるにも拘らず同様に機能しており、ペレット状水蒸気改質触媒を用いた従来の反応器を、本発明の反応器と同程度の反応原料送入速度まで上げて行くと反応速度の低下が見られた。このことにより、本発明の反応器によれば、従来のペレット状水蒸気改質触媒を充填した反応器よりも、大幅に小型化できることが証明される。

【0037】図3（外観図）および図4（断面図）、図5（断面図）、図6（断面図）は、本発明の反応器の他の各実施例を示す図であり、これらの例では、加熱室12の内部にも薄膜状燃焼触媒を設置した場合を示している。

★【0038】図3に示す例では、7つのコンパートメントから構成されていて、加熱室12、反応室11が交互に配列されている。図4は、図3の断面図であり、加熱室12の内部中央に薄膜状に成型された燃焼触媒2が設置され、また加熱室12内部には8本の燃料供給管8が水平に配列されており、燃料供給管8には図3のa-b線断面図である図8に示すように、多数のノズル孔9が設けられており、該ノズル孔9によりライン4から導入された燃料が薄膜状燃焼触媒2に十分行き届くようになっている。なお、図5に示すように、加熱室12には、上記のような燃料供給管が配列されていなくてもよい。加熱室12の排ガスは、図4、図5いずれの場合も、ライン6から排出される。また、加熱室12と反応室11

★50 は、図4、図5いずれの場合も、図1、図2に示した例

と同様に、隔壁7によって区切られている。

【0039】図4～図5に示す反応器を燃料電池と組み合わせる場合、燃料電池から排出される水素残存ガスを燃料として使用することもできる。なお、図4～図5に示す例における改質原料の供給および改質反応後の改質ガスの取り出しは、図1、図2に示した例と同じである。

【0040】図6は、図4における加熱室12と反応室11の各内部に設置される薄膜状燃焼触媒2と薄膜状水蒸気改質触媒1の設置位置および設置数量を変えた例を示している。すなわち、図6の例では、隔壁7の加熱室12の内部に面している側のそれぞれに薄膜状に成型された燃焼触媒2を合計で4つ、隔壁7の反応室11の内部に面している側のそれぞれに薄膜状に成型された水蒸気改質触媒1を合計で2つ設置している。そして、加熱室12の内部中央に4本の燃料供給管8が配列され、図4の場合と同様に、図8に示すライン4から導入される燃料が該供給管8から燃焼触媒2に供給され、触媒燃焼により高温の加熱ガスとなる。なお、図7に示すように、加熱室12には、上記のような燃料供給管が配列されていなくてもよい。

【0041】また、薄膜状の水蒸気改質触媒1および燃焼触媒2は、図6～図7に示す例では、反応室11および燃焼室12の内側壁面の左右両面に設置している。もちろん、いずれか片側の壁面にのみ設置するようにすることもできるが、熱的バランスからは左右両面に設けることが好ましい。図6～図7に示す反応器を燃料電池と組み合わせる場合も、図3～図4の場合と同様に、燃料電池から排出される水素残存ガスを燃料として使用することができる。なお、図6～図7に示す例においても、改質原料の供給および改質反応後の改質ガスの取り出しは、図1、図2に示した例と同じである。

【0042】図9は、本発明の反応器を、プレート状のコンパートメントを同心円筒形状に多重に重ねて構成した場合の一実施例を示したもので、(A)は外観図、

(B)は(A)のA-B線断面図、(C)は原料等の導入・取出のための配管の取付け態様を示す説明図である。本例では、図2に示す態様の、網状スパーサーに保持した薄膜状水蒸気改質触媒1をほぼ中央に設置した反応室11の側壁を構成するプレートと、加熱室12の側壁を構成するプレート(これらのプレートが反応室11と加熱室12との隔壁7となる)とを、円筒形状となるように曲げ、これらの円筒形状のプレートを同心円状に重ねて、本発明の反応器を構成したもので、図9中、図1～図2と同一符号は、図1～図2と同一機能部を示している。また、図示は省略するが、加熱室12にも薄膜状の燃焼触媒2を具備させた図3～8に示すようなもの

を、図9に示すような同心円筒形状に構成することができることは言うまでもない。

【0043】

【発明の効果】以上詳述したように、本発明の反応器によれば、従来のペレット状の水蒸気改質触媒や燃焼触媒を使用する水蒸気改質反応器に比較して、大幅な小型化を実現することができ、反応器容積、設置面積ともに極めて小さくすることができる。従って、炭化水素またはアルコール類を燃料とする燃料電池用の燃料改質装置として好ましく適用することができ、小型オンサイト型燃料電池パッケージが容易に実用化できる。しかも、このとき、加熱室内にも薄膜状の燃焼触媒を具備させておけば、燃料電池からの排出燃料水素残存ガスを加熱室に導入し、これを燃料として燃焼させて得られる熱を水蒸気改質反応に供給することもでき、熱効率の改善を図ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の反応器の一実施例を説明するための外観図である。

【図2】図1の断面図である。

【図3】本発明の反応器の他の実施例を説明するための外観図である。

【図4】図3の断面図である。

【図5】図4の変更例を説明するための図である。

【図6】図4の他の変更例を説明するための図である。

【図7】図6の他の変更例を説明するための図である。

【図8】図4および図6に示す例の燃焼室の他方向の断面図で、図3のa-b線断面図である。

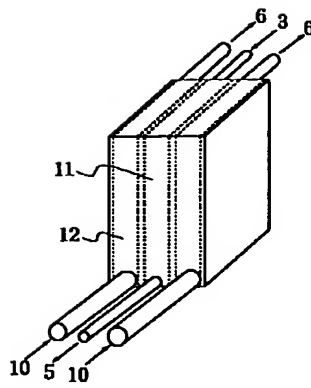
【図9】本発明の反応器のさらに他の実施例を説明するための図で、(A)は外観図、(B)は(A)のA-B線断面図、(C)は原料等の導入・取出のための配管の取付け態様を示す説明図である。

【図10】本発明に係る薄膜状触媒の反応室内への保持例を示す図である。

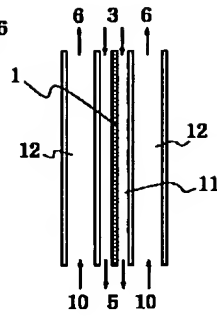
【符号の説明】

- 1 薄膜状水蒸気改質触媒
- 2 薄膜状燃焼触媒
- 3 改質原料導入ライン
- 4 燃料導入ライン
- 5 改質反応終了後のガスの取り出しライン
- 6 加熱室からの排ガスの排出ライン
- 7 隔壁(プレート)
- 8 燃料供給管
- 9 ノズル孔
- 10 高温ガス導入ライン
- 11 反応室
- 12 加熱室

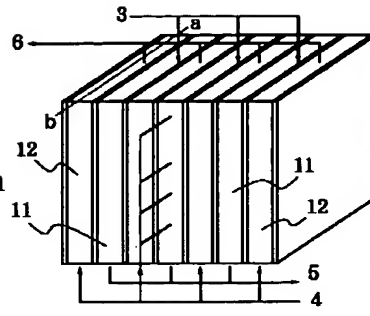
【図1】



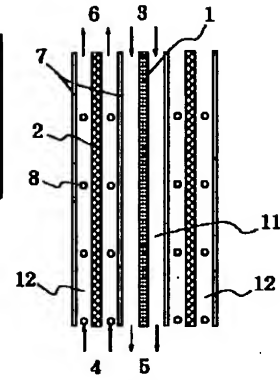
【図2】



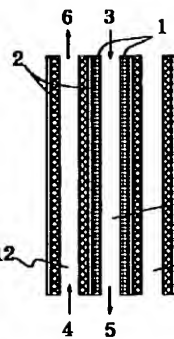
【図3】



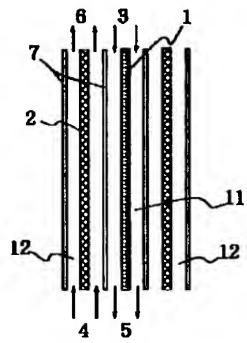
【図4】



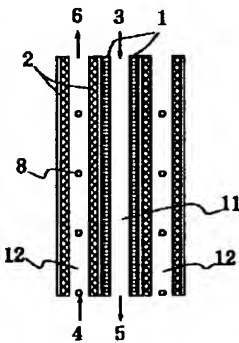
【図7】



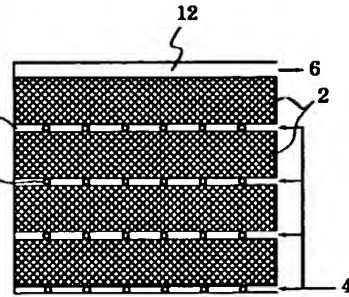
【図5】



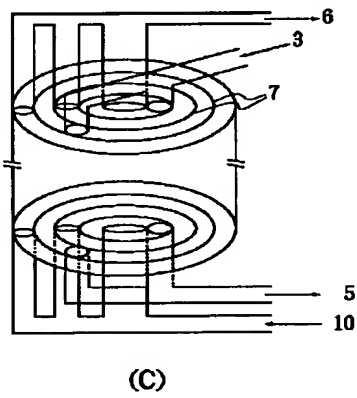
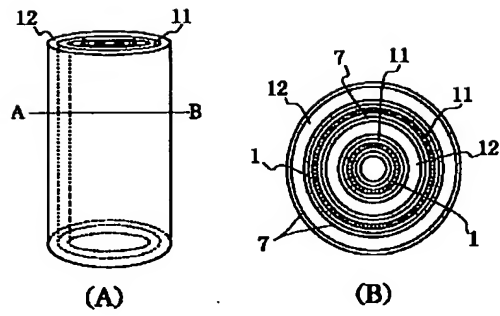
【図6】



【図8】



【図9】



【図10】

